

Журнал прикладной химии. 2002. Т. 75. Вып. 6

УДК 541.183.5:661.184.23

## ИСПОЛЬЗОВАНИЕ СЕЛЕКТИВНЫХ СОРБЕНТОВ НА ОСНОВЕ ЦЕОЛИТА NaX И $\text{Cu}_2[\text{Fe}(\text{CN})_6]$ ДЛЯ КОНЦЕНТРИРОВАНИЯ РАДИОНУКЛИДОВ ЦЕЗИЯ

© А.С.Панасюгин, Н.Б.Голикова, Н.П.Ильных, О.В.Струкова

Белорусская государственная политехническая академия, Минск  
Институт радиэкологических проблем НАН Белоруссии, Минск – Сосны  
Научно-исследовательский институт Белорусского государственного университета, Минск

Поступило в Редакцию 18 сентября 2001 г.; после исправления в январе 2002 г.

*Изучены динамические характеристики процесса сорбции  $^{137}\text{Cs}$  сорбентом на основе цеолита NaX и  $\text{Cu}_2[\text{Fe}(\text{CN})_6]$ .*

В результате катастрофы на Чернобыльской АЭС около 23% территории Белоруссии было загрязнено радионуклидами, в том числе и водосборы рек. Водные объекты являются основными артериями транспорта радионуклидов. Данная ситуация привела к необходимости усиления контроля за загрязнением воды радиоактивными элементами, прежде всего  $^{137}\text{Cs}$ .

Первым этапом любого метода определения активности воды является концентрирование пробы, которое проводят разными способами: выпариванием, соосаждением, диализом, применением сорбентов.

Наиболее перспективным способом концентрирования радионуклидов является использование сорбентов, особенно высокоселективных. С этой целью был синтезирован сорбент на основе цеолита NaX и  $\text{Cu}_2[\text{Fe}(\text{CN})_6]$ , способ получения которого аналогичен описанному в работе [1], и отработаны оптимальные режимы сорбции  $^{137}\text{Cs}$  в динамических условиях.

Эксперименты по изучению динамических характеристик процесса сорбции  $^{137}\text{Cs}$  проводили на стандартных колонках со следующими параметрами: диаметр 10 мм, высота 50 мм, объем сорбционного материала 5 мл, высота фильтрующего слоя 43–45 мм, размер гранул 1.5–2.2 мм.

Выбор оптимальных режимов работы сорбента проводили при пропускании раствора активностью  $2 \cdot 10^5 \text{ Бк} \cdot \text{л}^{-1}$  по  $^{137}\text{Cs}$  при разных скоростях. Исходной для приготовления радиоактивных растворов была вода следующего химического состава ( $\text{мг} \cdot \text{л}^{-1}$ ): взвешенных веществ –  $17.1 \pm 1.7$ , сухого остатка –  $349.5 \pm 8.3$ , ионов натрия –  $5.8 \pm 0.15$ , калия –  $1.0 \pm 0.1$ , аммония – менее 0.1, кальция –  $37.6 \pm 3.9$ , магния –  $6.4 \pm 0.44$ , железа общего –  $0.2 \pm 0.02$ , хлорид-ионов –  $8.1 \pm 0.79$ , сульфат-ионов –  $4.1 \pm 0.02$ , нитрат-ионов –  $2.2 \pm 0.04$ , гидрокарбонат-ионов –  $164.7 \pm 12.3$ , бромид-ионов –  $0.1 \pm 0.01$ , фторид-ионов –  $0.13 \pm 0.01$ , оксида кремния –  $10.77 \pm 1.05$ ; общая жесткость –  $2.47 \pm 0.05$ , карбонатная жесткость –  $2.46 \pm 0.06 \text{ мг-экв} \cdot \text{л}^{-1}$ ; pH  $8.3 \pm 0.06$ , что соответствует ГОСТ на питьевую воду.

Скорость пропускания раствора через колонки с сорбентом варьировали от 50 до 150 колоночных объемов в 1 ч. Отбор проб проводили после пропускания определенного количества колоночных объемов раствора. После окончания каждой серии экспериментов измеряли активность сорбента в верхних и нижних частях колонок.

Анализ проб проводили на радиометре РУБ-01П4С с блоком детектирования БДЖБ-06П1. Относительная погрешность измерения не превышала  $\pm 7\%$ .

На основании экспериментальных значений активности раствора до и после пропускания через сорбент по соответствующим формулам были рассчитаны коэффициент очистки  $K_{\text{оч}}$  и степень сорбции  $S$  (%):

$$K_{\text{оч}} = A_0 / A_f, \quad S = \frac{A_0 - A_f}{A_0} \cdot 100,$$

где  $A_0$  и  $A_f$  – активности радионуклида в растворе до и после пропускания через сорбент соответственно.

Расчет сорбционных параметров проводили согласно методикам, приведенным в работах [2–5].

Как видно из рис. 1, а, эффективность извлечения  $^{137}\text{Cs}$  из высокоактивного раствора на колонке, заполненной цеолитом NaX, модифицированным  $\text{Cu}_2[\text{Fe}(\text{CN})_6]$ , сохраняется достаточно высокой при увеличении скорости фильтрации от 50 до 150 колоночных объемов в 1 ч. Хотя коэффициент очистки  $K_{\text{оч}}$  снижается от 513 до 85, степень сорбции  $S$  остается на уровне 98.5–99.8% (рис. 1, б). При этом на начальном этапе в зависимости от скорости фильтрации происходит увеличение или снижение коэффициента очистки, а затем наступает последующая стабилизация работы фильтрующего элемента. Из рис. 1, а, б видно, что оптимальной скоростью для данного фильтрующего элемента является 75 колоночных объемов в 1 ч. Такая тенденция ранее была описана в работах [6–13].

Дальнейшее изучение сорбции  $^{137}\text{Cs}$  на цеолите NaX–Cu при скорости фильтрации 75 колоночных



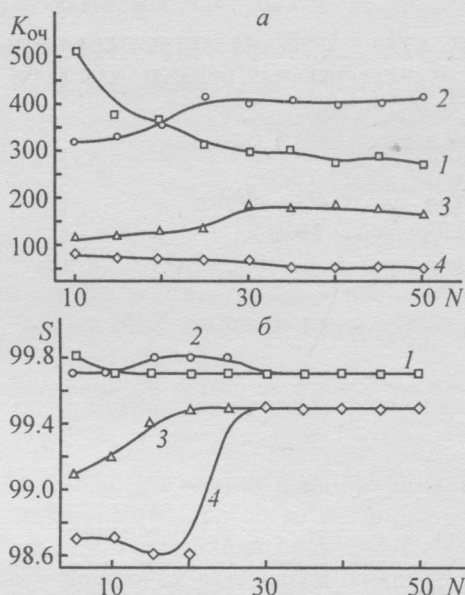


Рис. 1. Зависимости коэффициента очистки  $K_{оч}$  (а) и степени сорбции  $S$  (%) (б) от количества пропущенных колоночных объемов  $N$  для различных скоростей фильтрации воды на образце цеолита NaX-Cu.

Скорость фильтрации воды  $V$  (ч<sup>-1</sup>): 1 – 50, 2 – 75, 3 – 100, 4 – 150.

объемов в 1 ч проводили при уменьшении удельной активности раствора  $^{137}\text{Cs}$  от  $2 \cdot 10^5$  до  $6.2 \text{ Бк} \cdot \text{л}^{-1}$  и увеличении количества пропущенного раствора от 50 до 6000 колоночных объемов. Сорбция в данном случае составила 96.0–98.0%.

В ходе исследований установлено, что при оптимальной скорости фильтрации исходная активность раствора не оказывает заметного влияния на место локализации цезия-137 в объеме колонки. Как видно из рис. 2, а, соотношение активностей сорбента в верхней и нижней частях колонки  $Y$  при изменении исходной активности раствора  $A_0$  от  $2.0 \cdot 10^5$  до  $6.2 \text{ Бк} \cdot \text{л}^{-1}$  находится в пределах 14.3–14.4.

В процессе работы был проведен эксперимент, в ходе которого через колонку с цеолитом NaX-Cu пропустили раствор активностью  $6.2 \text{ Бк} \cdot \text{л}^{-1}$  со скоростью 200 колоночных объемов в 1 ч. Сорбция в данных условиях составила 95.0–96.0%.

Увеличение скорости пропуска раствора от 50 до 200 колоночных объемов в 1 ч приводит к размыванию сорбционного фронта, что выражается в уменьшении соотношения активностей сорбента в верхней и нижней частях колонки от 14.4 до 4 (рис. 2, б).

### Выводы

Проведенные исследования показали, что цеолит NaX, модифицированный  $\text{Cu}_2[\text{Fe}(\text{CN})_6]$ , является носителем сорбента. Скорость пропуска ис-

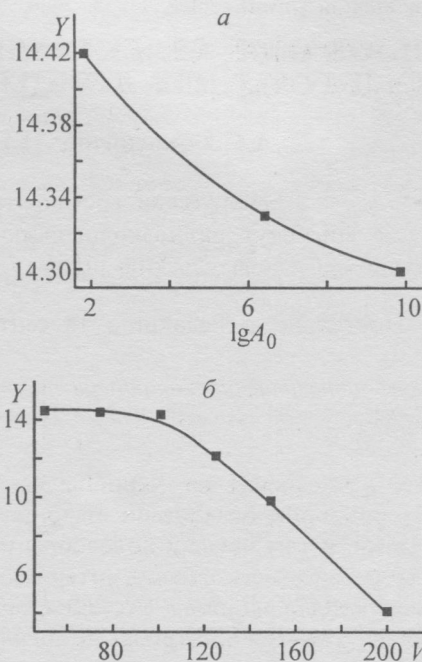


Рис. 2. Зависимости соотношения активностей сорбента в верхней и нижней частях колонки  $Y$  от исходной активности раствора  $A_0$  (Бк·л<sup>-1</sup>) (а) и объемной скорости пропуска радиоактивного раствора  $V$  (ч<sup>-1</sup>) (б).

следуемого раствора 75 колоночных объемов в 1 ч оптимальна для извлечения  $^{137}\text{Cs}$  из питьевой воды.

### Список литературы

- [1] А.с. 330195 СССР, МКИ<sup>4</sup> В 01 J 20/00. Способ получения композиционного сорбента.
- [2] Иониты в химической технологии / Под ред. Б.П.Никольского и П.Г.Романкова. Л.: Химия, 1982. 415 с.
- [3] Салдадзе К.М., Копылова-Валова В.Д. Комплексообразующие иониты. М.: Химия, 1980. 336 с.
- [4] Когановский А.М. Адсорбция и ионный обмен в процессах водоподготовки и очистки сточных вод. Киев: Наук. думка, 1983. 240 с.
- [5] Berry J.A. et al. // Radiochim. Acta. 1988. V. 44–45. P. 135–141.
- [6] Кудрявцев Г.В., Бернадюк С.З., Лисичкин Г.В. // Успехи химии. 1989. Т. 58. № 4. С. 684–709.
- [7] Бетенеков Н.Д., Губанова А.И., Егоров Ю.В. // Радиохимия. 1976. Т. 18. № 4. С. 622–627.
- [8] Ampflett C.B., McDonald Z.A., Redman M.I. // J. Inorg. Nucl. Chem. 1958. V. 6. N 3. P. 220–235.
- [9] Гельферих Ф. Иониты. М.: ИЛ, 1962. 490 с.
- [10] Кузнецов Ю.В., Щетковский В.Н., Трусов А.Г. Основы очистки воды от радиоактивных загрязнений. М.: Атомиздат, 1974. 360 с.
- [11] Егоров Ю.В. // Соосаждение и адсорбция радиоактивных элементов. М.; Л.: Наука, 1965. С. 113–117.
- [12] Del Debllo J.A. // Radiochim. Acta. 1991. V. 52–53. Pt 1. P. 181–186.
- [13] Никашина В.А., Заборская Е.Ю., Махалов Е.М. и др. // Радиохимия. 1974. Т. 16. № 6. С. 753–756.